

## BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

30.10.2004

PRIORITY  
DOCUMENTSUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

REC'D 17 DEC 2004

WIPO PCT

**Prioritätsbescheinigung über die Einreichung  
einer Patentanmeldung**

**Aktenzeichen:** 103 53 033.9  
**Anmeldetag:** 13. November 2003  
**Anmelder/Inhaber:** Inficon GmbH,  
50968 Köln/DE  
**Bezeichnung:** Verfahren zum Betrieb eines Wasserstoff-Testlecks  
**IPC:** G 01 M 3/00

**Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.**

München, den 16. September 2004  
**Deutsches Patent- und Markenamt**  
**Der Präsident**  
 Im Auftrag

Ebert

Patentanwälte Patent Attorneys  
VON KREISLER SELTING WERNER

Deichmannhaus am Dom  
D-50667 KÖLN

von Kreisler Selting Werner · Postfach 10 22 41 · D-50462 Köln  
P.O. Box

Inficon GmbH  
Bonner Straße 498  
50968 Köln

Unser Zeichen:  
032428de/Sg/scs

Patentanwälte  
Dipl.-Chem. Alek von Kreisler  
Dipl.-Ing. Günther Selting  
Dipl.-Chem. Dr. Hans-Karsten Werner  
Dipl.-Chem. Dr. Johann F. Fues  
Dipl.-Ing. Georg Dallmeyer  
Dipl.-Ing. Jochen Hilleringmann  
Dipl.-Chem. Dr. Hans-Peter Jönsson  
Dipl.-Chem. Dr. Hans-Wilhelm Meyers  
Dipl.-Chem. Dr. Thomas Weber  
Dipl.-Chem. Dr. Jörg Helbing  
Dipl.-Ing. Alexander von Kirschbaum  
Dipl.-Chem. Dr. Christoph Schreiber

KÖLN,  
12. November 2003

Verfahren zum Betrieb eines Wasserstoff-Testlecks

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zum Betrieb eines Wasserstoff-Testlecks, das eine durch eine Membran begrenzte Kammer aufweist, in welche ein Prüfgasgemisch aus Wasserstoff und mindestens einem Beimischungsgas eingeführt wird.

Testlecks werden benutzt, um Leckstrommessgeräte zu kalibrieren. Ein Testleck weist einen Behälter auf, in dem ein Volumen eines Prüfgases oder Prüfgasgemisches unter geregeltem Druck gehalten wird. Die Kammer enthält einen Ausgang, der an eine Kapillare oder ein anderes definiertes Testleck, das ins Freie führt, angeschlossen ist. Zur Druckregelung weist die Kammer eine Membran auf, die mit einer Feder abgestützt ist und bei Auslenkung ein Regelventil betätigt, welches eine das Gas liefernde Druckquelle ein- und ausschaltet.

Wasserstoff darf aufgrund seiner Explosivität nicht als reines Gas in Testlecks eingesetzt werden. Daher wird üblicherweise ein sauerstofffreies Wasserstoff-/Stickstoffgemisch als Prüfgasgemisch (Formiergas) verwendet. Nun ist die Membran, die die Kammer des Druckregelventils abschließt, nicht gasundurchlässig. Vielmehr hat sie für verschiedene Gase unterschiedene Permeabilitäten. Dies hat zur Folge, dass der Wasserstoff schneller aus der Kammer entweicht als der Stickstoff, so dass die Stickstoffkonzentration in der Kammer zunimmt. Üblicherweise besteht das Prüfgasgemisch aus 95 % N<sub>2</sub> und 5 % H<sub>2</sub>. Der Wasserstoffanteil kann bis zu 10 % betragen. Darüber besteht Explosionsgefahr.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren zum Betrieb eines Wasserstoff-Testlecks anzugeben, das eine hohe zeitliche Konstanz der Leckrate aufweist.

Das erfindungsgemäße Verfahren ist durch den Patentanspruch 1 definiert. Erfindungsgemäß wird als Beimischungsgas ein Gas gewählt, das in Bezug auf das Material der Membran einen Permeationskoeffizienten hat, der zwischen 50 % und 200 % desjenigen von Wasserstoff liegt.

Die Erfindung geht von dem Gedanken aus, dass zur Vermeidung einer Entmischung durch Permeation die Komponenten des Prüfgasgemisches annähernd gleiche Permeationskoeffizienten in Bezug auf das Membranmaterial haben sollte. Die Permeationskoeffizienten hängen weitgehend, jedoch nicht ausschließlich, von der Molekülgröße ab. Das Wasserstoffmolekül ist relativ klein und hat im Allgemeinen relativ hohe Permeationskoeffizienten. Entsprechendes gilt auch für Helium. Andererseits hat sich erge-

ben, dass auch relativ große Moleküle, wie beispielsweise  $\text{CO}_2$ ,  $\text{CH}_4$  oder  $\text{C}_2\text{H}_6$  eine hohe Permeation aufweisen können.

Als Beimischungsgas für Wasserstoff hat sich Helium als besonders geeignet erwiesen. In Versuchen hat sich gezeigt, dass die Permeation durch eine Membran im Wesentlich gleich schnell für Wasserstoff und Helium verläuft. Ein Vorteil dieser Kombination besteht darin, dass man den Wasserstoffanteil auf etwa 5 % reduzieren kann. Dies ist im Hinblick auf Gefahrgutklassen von Bedeutung. Eine weitere Randbedingung besteht darin, dass die Lebensdauer des Testlecks bei einem Jahr liegen sollte. Bisher war ein Wasserstoffanteil von 5 % nicht möglich, da durch die notwendige Bypasskapillare zu viel Gas ausgestoßen wurde und die Lebensdauer nicht eingehalten werden konnte.

Als Beimischungsgas geeignet sind Helium (He), Kohlendioxid ( $\text{CO}_2$ ), Methan ( $\text{CH}_4$ ) und Aethan ( $\text{C}_2\text{H}_6$ ). Diese Aufzählung ist jedoch nicht abschließend.

Das Beimischungsgas sollte sauerstofffrei sein, damit es nicht mit dem Wasserstoff ein explosionsfähiges Gemisch bildet. Dies ist allerdings keine notwendige Bedingung. Durch Verringerung des Wasserstoffanteils kann die Explosionsfähigkeit des Prüfgasgemisches verringert werden.

Im Folgenden wird unter Bezugnahme auf die Zeichnungen ein Ausführungsbeispiel der Erfindung näher erläutert..

Es zeigen:

Fig. 1 ein Funktionsschaubild des Wasserstoff-Testlecks, und

Fig. 2 eine prinzipielle konstruktive Ausgestaltung des Wasserstoff-Testlecks.

Gemäß Figur 1 wird ein Prüfgasmisch 10 in ein Druckregelvolumen 11 eingeführt. Das Druckregelvolumen 11 weist ein Druckreduzierventil auf, welches mit einer Regelmembran 12 versehen ist. Ein Druckregelventil 13 regelt mit Hilfe der Regelmembran 12 den Druck im Druckregelvolumen 11 auf einen konstanten Wert. Das Druckregelventil ist mit einer leckratenbestimmenden Kapillare 14 verbunden, aus der der Leckstrom 15 mit der Prüfgasleckrate austritt.

Das Druckregelvolumen 11 bzw. das Druckregelventil 13 ist mit einer Bypasskapillare 16 verbunden, die einen Bypassstrom 17 ins Freie leitet, um eine ständige Durchströmung des Druckregelvolumens 11 zur Vermeidung von Entmischungen zu bewirken.

Figur 2 zeigt den Druckregler 20, dem das Prüfgasmisch 10 zugeführt wird. Der Druckregler 20 enthält eine Kammer 21, in die das Prüfgasmisch eingeführt wird. Diese Kammer ist mit einer Membran 22 verschlossen. Die Membran 22 besteht aus Elastomermaterial. Sie ist von einer Feder 23 abgestützt, die dem Druck in der Kammer 21 entgegenwirkt. Das Druckregelventil 24 weist eine Leitung 25 auf, mit der das unter hohem Druck stehende Prüfgasmisch in die Kammer 21 eingeführt wird. Der Auslass der Leitung 25 wird von einem beweglichen Ventilorgan 26 geöffnet und geschlossen. Das Ventilorgan 26 ist über eine Stange 27, welche einen zweiarmigen Hebel bildet, mit einer Kopplungseinrichtung 28 verbunden, welche den einen Hebelarm mit der Membran 22 verbindet. Die Auslenkbewegungen der Membran 22 bewirken, dass das Druckregelventil 24 geöffnet oder geschlossen wird. Auf diese Weise wird ein der Kraft der Feder 23

entsprechender Druck in der Kammer 21 eingestellt und aufrecht-  
erhalten.

In Figur 2 ist ferner der Testleckausgang 30 dargestellt, der  
mit einer (nicht dargestellten) leckratenbestimmenden Kapillare  
verbunden ist, welche ins Freie führt.

Ferner ist an der Kammer 21 eine Bypasskapillare 31 vorgesehen,  
durch die ein Leckstrom ständig ins Freie geführt wird.

Der Raum unter der Membran 22 ist durch einen Behälter 33 be-  
grenzt, der die Feder 23 abstützt und eine Entlüftungsöffnung  
34 aufweist.

Die kleinen Punkte in Figur 2 repräsentieren das Mischgasvolu-  
men und die dicken Punkte repräsentieren die Wasserstoffmole-  
küle. Die Wasserstoffmoleküle defundieren aus der Kammer 21  
durch die Membran 22 und gelangen durch die Entlüftungsöffnung  
34 auch ins Freie.

Die Membran 22 ist eine Polymermembran. Bei einem Ausführungs-  
beispiel besteht sie aus Polybutadiene-Co-Acrylonitrile  
(Perbunan 18). Bei einem anderen Ausführungsbeispiel besteht  
sie aus 73/27 Perbunan.

Die nachstehende Tabelle gibt den Permeationskoeffizient  $P$  für  
die genannten Membranwerkstoffe an. Der Permeationskoeffizient  
 $P$  hat in der nachfolgend zitierten Tabelle (aus Yasuda, H.,  
Stannet, V.: Polymer Handbook, J. Wiley & Sons, New York 1975)  
die Dimension

$$[\text{cm}^3 \text{ (STP)} \text{ cm cm}^{-2} \text{ s}^{-1} (\text{cm Hg})^{-1}]$$

Tabelle

Membranmaterial

Poly(butadiene-co-acrylonitrile) 80/20

$P \times 10^{10}$

He	16,9
H <sub>2</sub>	25,2
N <sub>2</sub>	2,52
O <sub>2</sub>	8,16
CO <sub>2</sub>	63,1

73/27 (Perbunan)

He	12,2
H <sub>2</sub>	15,9
N <sub>2</sub>	1,06
O <sub>2</sub>	3,85
CO <sub>2</sub>	30,8
C <sub>2</sub> H <sub>2</sub>	24,9
C <sub>3</sub> H <sub>8</sub>	77,7

Der Permeationskoeffizient P für Wasserstoff beträgt hier je nach Membranmaterial 25,2 oder 15,9. Das Beimischungsgas wird so gewählt, dass sein Permeationskoeffizient zwischen 50 und 200 % desjenigen von Wasserstoff liegt. Hierfür kommen auch noch andere Beimischungsgase in Betracht, die in der Tabelle nicht angegeben sind. Vorzugsweise liegt der genannte Bereich zwischen 50 % und 150 %.

PATENTANSPRÜCHE

1. Verfahren zum Betrieb eines Wasserstoff-Testlecks, das eine durch eine Membran (22) begrenzte Kammer (21) aufweist, in welcher ein Prüfgasgemisch aus Wasserstoff und mindestens einem Beimischungsgas eingeführt wird,

dadurch gekennzeichnet,

dass das Beimischungsgas in Bezug auf das Material der Membran (22) einen Permeationskoeffizienten (P) hat, der zwischen 50 % und 200 % desjenigen von Wasserstoff liegt.

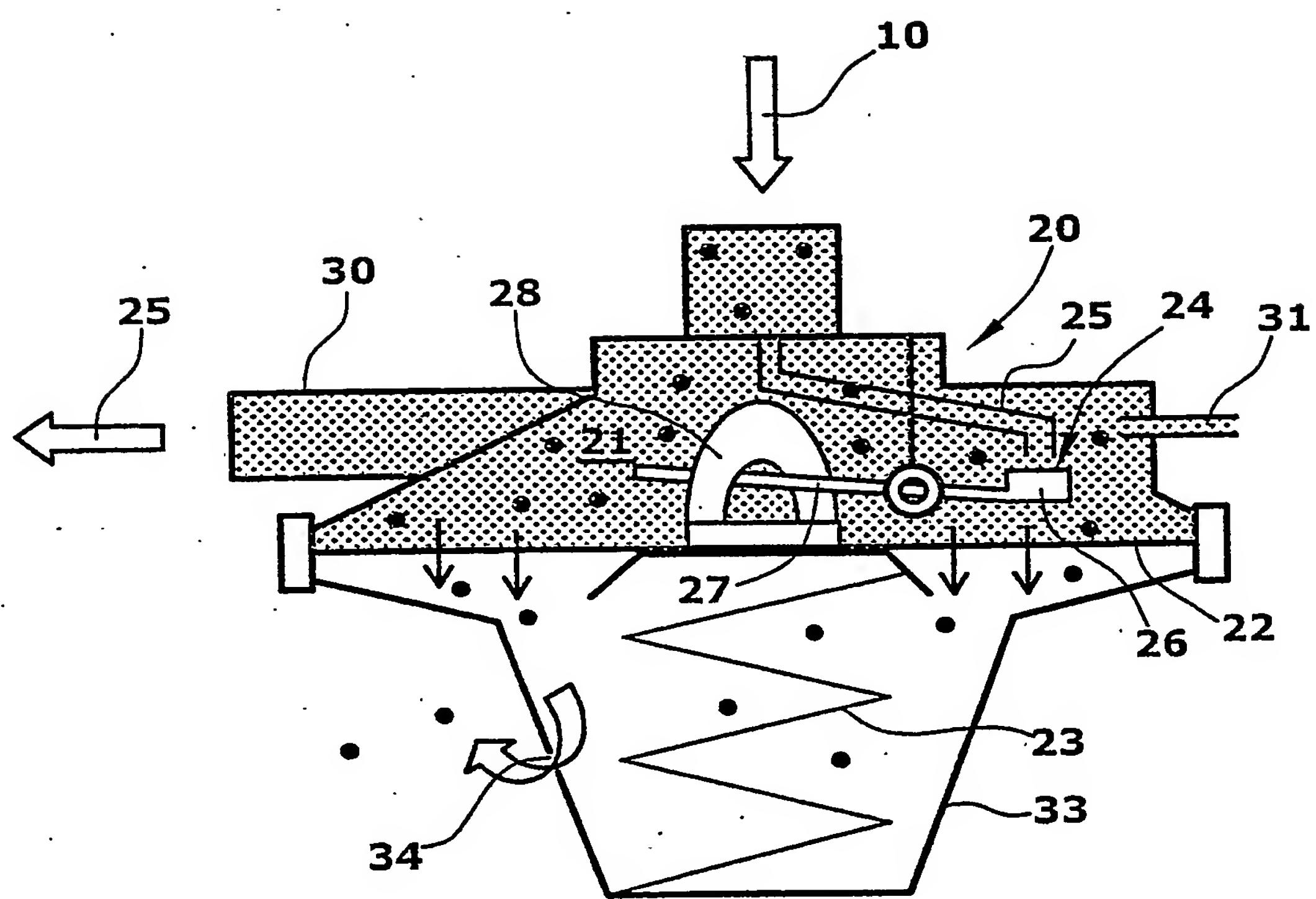
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass als Beimischungsgas Helium, Kohlendioxid oder Methan gewählt wird.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass das Beimischungsgas sauerstofffrei ist.
4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 - 3, dadurch gekennzeichnet, dass der Wasserstoffanteil des Prüfgasgemisches geringer ist als 10 %.

## ZUSAMMENFASSUNG

### Verfahren zum Betrieb eines Wasserstoff-Testlecks

Zum Betrieb eines Wasserstoff-Testlecks, das eine durch eine Membran (22) begrenzte Kammer (21) aufweist, wird ein Prüfgasgemisch aus Wasserstoff und einem Beimischungsgas benutzt. Das Beimischungsgas hat in Bezug auf das Material der Membran (22) einen Permeationskoeffizienten, der zwischen 50 % und 200 % desjenigen von Wasserstoff liegt. Auf diese Weise wird die Entmischung des Prüfgasgemisches begrenzt und signifikante Konzentrationsänderungen in der Kammer (21) werden vermieden. Vorauswärts wird als Beimischungsgas Helium benutzt.

(Fig. 2)



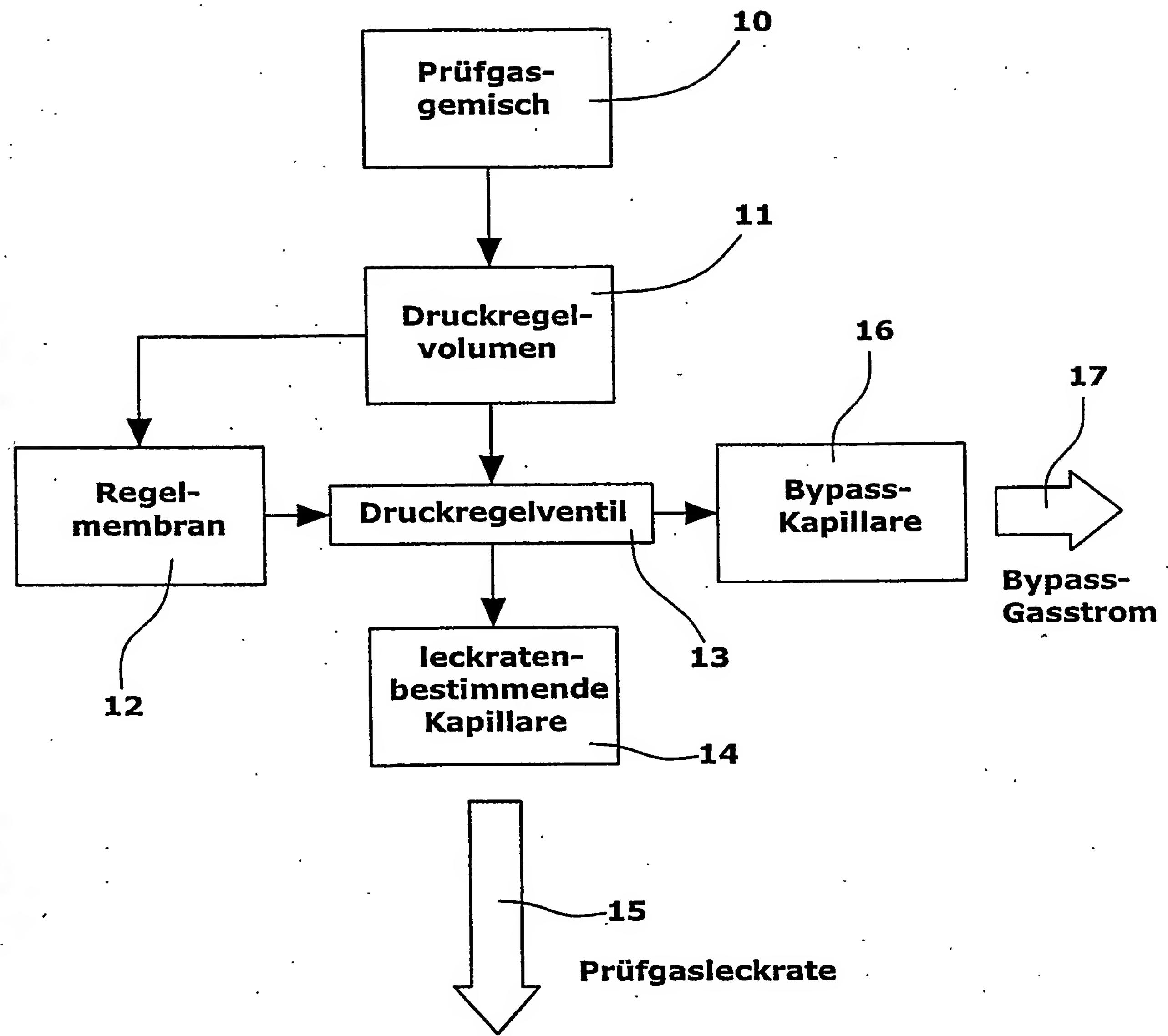
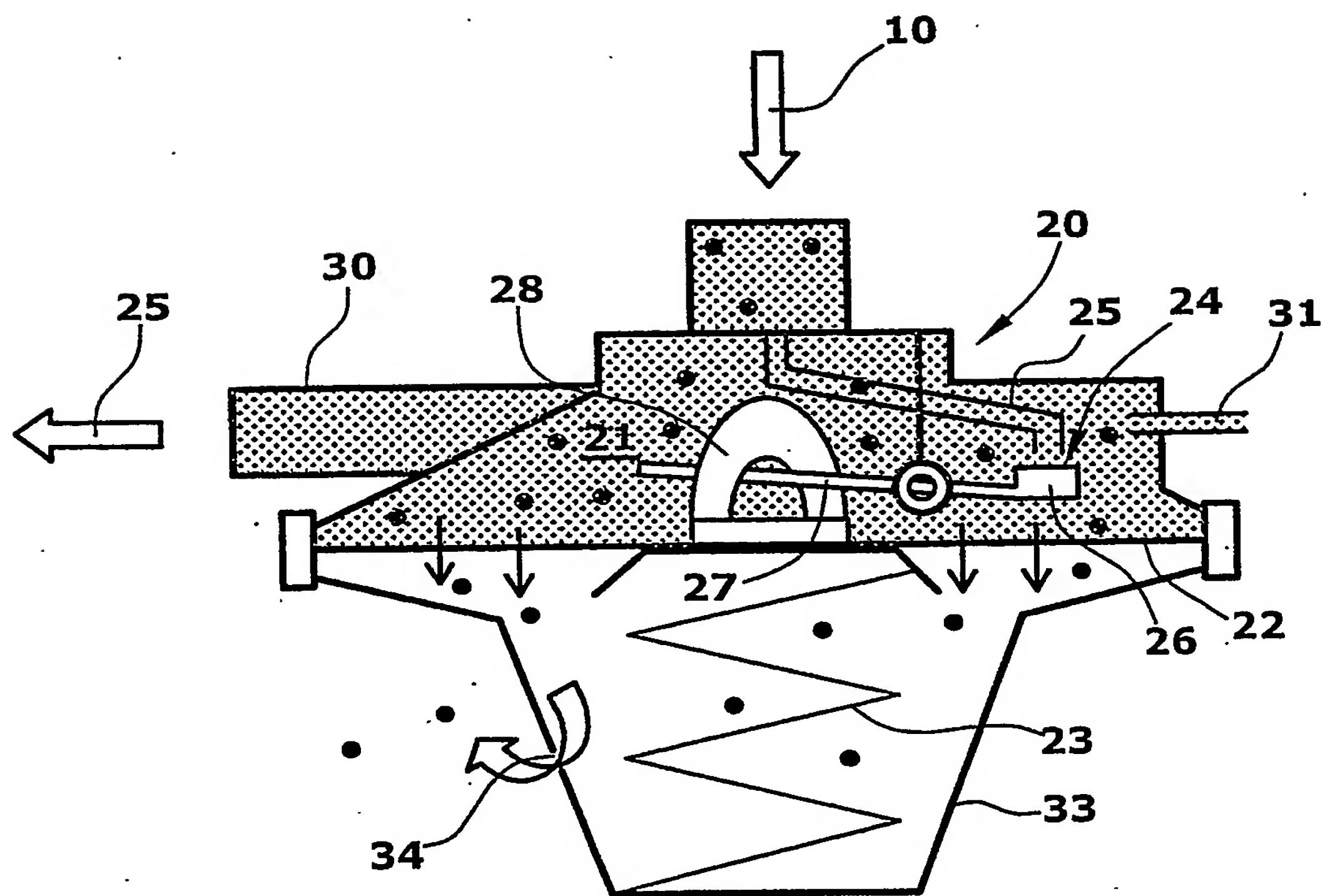


Fig.1

- 2/2 -



**Fig. 2**

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

**BLACK BORDERS**

**IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**

**FADED TEXT OR DRAWING**

**BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**

**SKEWED/SLANTED IMAGES**

**COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**

**GRAY SCALE DOCUMENTS**

**LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**

**REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**

**OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**